

复杂流体中纳米粒子反常扩散实验研究

郑旭, 薛春冬, 胡国庆

(中国科学院力学研究所非线性力学国家重点实验室, 100190)

摘要 扩散是纳米尺度下最常见的粒子运动及物质输运方式。与简单流体中布朗扩散不同, 在复杂流体中, 纳米粒子运动受到其附近流体非均匀结构的影响, 将表现出反常的受限扩散特性。本文利用粒子跟踪技术, 实验测量了不同尺寸的纳米粒子(40~500nm)在不同浓度和分子量的聚环氧乙烷溶液中的扩散运动。结果显示纳米粒子反常扩散运动的非高斯性源自少量粒子的“跳跃扩散(hopping diffusion)”。并进一步解释了复杂流体浓度进一步提高后跳跃扩散的行为特征, 给出了全新的标度律和特征时间尺度。

关键词: 反常扩散、纳米粒子、非高斯特性、微纳流动、复杂流体

一、引言

扩散是纳米尺度下最常见的粒子运动及物质输运方式。与简单流体中布朗扩散不同, 在复杂流体中, 纳米粒子运动受到其附近流体非均匀结构的影响, 将表现出反常的受限扩散特性, 即均方位移与时间呈非线性关系。近年来研究发现, 某些特征时间尺度下纳米粒子的均方位移与时间仍符合类似布朗运动的线性关系, 但其运动的位移概率密度分布却展现出非高斯性质。这种被称为“非高斯布朗(non-Gaussian yet Brownian)”^[1]的反常现象引起了学界的高度关注, 但其来源与机制一直没有得到很好的解释。

二、实验方法

本文利用粒子跟踪(Particle tracking)可视化技术, 实验测量了不同尺寸的纳米粒子(粒径 40-500nm)在不同浓度和分子量的聚环氧乙烷溶液中的扩散运动。实验观测采用力学所非线性室的微纳流动观测系统, 使用 Olympus IX71 配合 100x/1.4 的物镜, 测量了粒子的运动轨迹。图像分辨率为 512×512 像素, 单像素尺寸为 160nm, 通过图像处理可以实现亚像素的粒子定位精度。实验拍摄视频两帧间隔为 5ms。通过拍摄的粒子轨迹, 可以得到粒子的位移以及均方位移(MSD)等基本信息(图 1a)。我们进而基于非高斯系数、位移概率分布及位移自相关系数等统计结果(图 1b), 分析了反常受限扩散运动中非高斯性的来源。

三、结论

结果显示纳米粒子反常扩散运动的非高斯性源自少量粒子的“跳跃扩散(hopping diffusion)”^[2], 即纳米粒子可以穿越周围高聚物网状结构而表现出的大位移运动。观测到非高斯性随时间和粒子尺寸而改变, 当纳米粒子尺寸小于高聚物特征网格尺寸时, 非高斯性明显增强而且会持续存在较长时间。以往的研究往往仅关注纳米粒子与高聚物分子的短时间微观相互作用, 而无法解释实验在较长时间尺度观察到的非高斯特性; 而现研究提出了“跳跃扩散(hopping diffusion)”才是“non-Gaussian yet Brownian”反常现象的根源的全新观点。我们还尝试解释了复杂流体浓度进一步提高后跳跃扩散的行为特征, 给出了全新的标度律和特征时间尺度。在应用方面, 跳跃扩散将能够解释诸如催化反应及生物体内信号和代谢穿梭等小概率事件主导的现象。

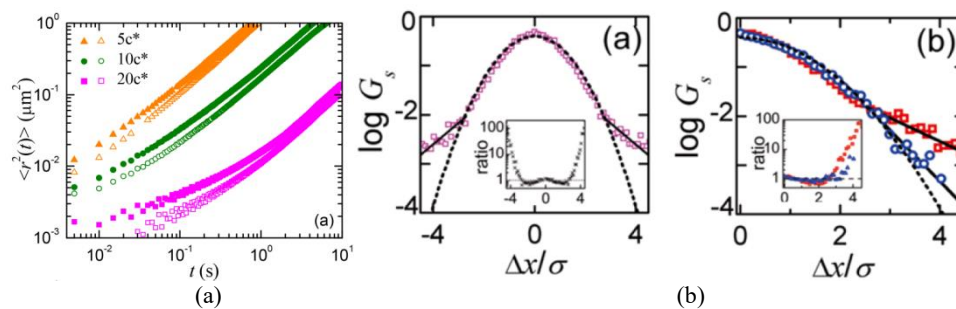


图 1 (a) 纳米粒子的均方位移 MSD; (b) 纳米粒子的位移概率分布(DPD)呈现肥尾非高斯特性

参 考 文 献

- 1 Wang B, Kuo J, Bae S, Granick S. When Brownian diffusion is non-Gaussian. *Nature Material*. 2012; 11: 481-485
- 2 Xue C, Zheng X, Chen K, Tian Y, Hu G. Probing Non-Gaussianity in Confined Diffusion of Nanoparticles. *Journal of Physical Chemistry Letters*, 2016; 7:514-519